

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平8-180886

(43) 公開日 平成8年(1996)7月12日

(51) Int.Cl. <sup>6</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
H 0 1 M	8/02	E		
		K		
	4/86	T		
	8/12			

審査請求 未請求 請求項の数 5 O L (全 4 頁)

(21) 出願番号 特願平6-321868

(22) 出願日 平成6年(1994)12月26日

(71) 出願人 000220262

東京瓦斯株式会社

東京都港区海岸1丁目5番20号

(72) 発明者 菱沼 祐一

神奈川県横浜市港南区東永谷1-37-23

(72) 発明者 松崎 良雄

東京都荒川区南千住3-28-70-901

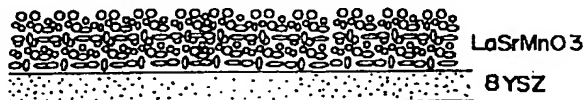
(74) 代理人 弁理士 鈴木 弘男

(54) 【発明の名称】 固体電解質型燃料電池の空気極の接触抵抗低減方法

(57) 【要約】

【目的】 固体電解質型燃料電池の内部抵抗を低減し、燃料電池の出力密度を向上させるため、固体電解質層と電極の接触抵抗を低減させる方法を提供すること。

【構成】 固体電解質層と空気極との間に8YSZの薄層を挟むように構成し、空気極と8YSZの薄層とを共焼結した。



YSZ

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 固体電解質層と空気極との間にYSZの薄層を挟むように構成したことを特徴とする固体電解質型燃料電池の空気極の接触抵抗低減方法。

【請求項2】 YSZの層と空気極を共に未焼結の状態に固体電解質層の上に塗布し、YSZの薄層と空気極を固体電解質上で共焼結することを特徴とする固体電解質型燃料電池の空気極の接触抵抗低減方法。

【請求項3】 上記YSZが8mol%Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、-92mol%ZrO<sub>2</sub>（8YSZ）の組成であることを特徴とする請求項1に記載の空気極の接触抵抗低減方法。

【請求項4】 上記固体電解質層が3mol%Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、-97mol%ZrO<sub>2</sub>（3YSZ）の組成であり、上記YSZが8mol%Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、-92mol%ZrO<sub>2</sub>（8YSZ）の組成であることを特徴とする請求項2に記載の空気極の接触抵抗低減方法。

【請求項5】 上記YSZの薄層が未焼結の状態にYSZの微粉体とYSZの金属有機化合物とを含むことを特徴とする請求項2に記載の空気極の接触抵抗低減方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は固体電解質型燃料電池の空気極の接触抵抗低減方法に関する。

## 【0002】

【従来の技術】 最近、空気と都市ガスをそれぞれ、酸化剤および燃料として、燃料が本来持っている化学エネルギーを直接電気エネルギーに変換する燃料電池が、省資源、環境保護などの観点から注目されている。

【0003】 固体電解質型燃料電池は固体電解質層を挟むように燃料極と空気極を配置してなる平板状単電池と、隣接する単電池同士を電氣的に直列に接続しかつ各単電池に燃料ガスと酸化剤ガスを分配するセパレータとを交互に積層して複層のスタックとして構成されたものである。最近、イットリアなどをドーパしたジルコニア（YSZ）を単電池の電解質層として用い、耐熱性金属や導電性酸化物をセパレータとして用いた固体電解質型燃料電池は、作動温度が高く、発電効率が高く、高温の廃熱の利用により総合効率が高いので、研究開発が進んでいる。

【0004】 通常、単電池は上述の3YSZまたは8YSZの固体電解質層を挟むように燃料極としてNi/YSZサーメットを、空気極として導電性酸化物のストロンチウムをドーパしたランタンマンガンナイト（La（Sr）MnO<sub>3</sub>）を、スクリーン印刷などによりコーティングし、焼成したものが一般に使用されている。

## 【0005】

【発明が解決しようとする課題】 図2は固体電解質層の上に形成された空気極の断面電子顕微鏡写真であり、

（a）は従来例（b）は本発明を示す。

【0006】 図2（a）に示す従来例では電解質に3Y 50

SZを使用し、空気極にLa（Sr）MnO<sub>3</sub>を使用し、この図の下部は3YSZ、上部は空気極である。従来例は空気極の活性自体は良好で、反応分極等は小さくても、電解質との接触抵抗が大きいという欠点があった。特に、電解質として3YSZを使用した場合に空気極La（Sr）MnO<sub>3</sub>の接触抵抗が大きくなる。

【0007】 本発明は上述の点に鑑みてなされたもので、燃料電池の内部抵抗を低減し、燃料電池の出力密度を向上させるため、固体電解質層との接触抵抗を低減させる方法を提供することを目的とする。

## 【0008】

【課題を解決するための手段】 上記課題を解決するため、本発明は固体電解質層と空気極La（Sr）MnO<sub>3</sub>との間にYSZの層を挟むように構成したことを特徴とする。

【0009】 また、本発明はYSZの層と空気極La（Sr）MnO<sub>3</sub>をあらかじめ共焼結法により焼結し、そのYSZの層を固体電解質層に重ねたことを特徴とする。

20 【0010】 また、本発明はYSZの層と空気極La（Sr）MnO<sub>3</sub>を共焼結法により焼結し、そのYSZの層を固体電解質層に重ねたことを特徴とする。

## 【0011】

【作用】 空気極と固体電解質層との接触抵抗を低減させる。よって、燃料電池の内部抵抗が低減する。

## 【0012】

【実施例】 以下、本発明を図面に基づいて説明する。

【0013】 図1は本発明の方法の概略構造を説明する図である。

30 【0014】 本発明の方法には3種類の方法がある。これら3種類の方法はすべて図1に示される。

（1）固体電解質層3YSZと空気極La（Sr）MnO<sub>3</sub>との間に8YSZの層を挟む。3YSZよりも導電性に優れる8YSZの層を挟むことにより接触抵抗の低減を図った。

（2）上記方法をさらに一步進めて、8YSZの層と空気極La（Sr）MnO<sub>3</sub>を共焼結法により同時に焼結する。この場合も（1）と同様に、3YSZよりも導電性に優れる8YSZの層を挟むことおよび、共焼結による界面の改善により接触抵抗の低減を図った。

（3）上記の8YSZの層と空気極La（Sr）MnO<sub>3</sub>を8YSZの固体電解質層上で共焼結する。この場合共焼結の効果により、接触抵抗が低減した。

【0015】 図2（b）は本発明の方法により固体電解質層の上に形成された空気極の断面電子顕微鏡写真である。すなわち、上記（1）および（2）の場合に得られた固体電解質層およびその上の空気極の断面電子顕微鏡写真であり、図1に対応して一番下に固体電解質層3YSZ、その上に8YSZの層、最上に空気極La（Sr）MnO<sub>3</sub>を示す。空気極と下層との接触面積が拡大

していることが判明する。この時、8YSZ層の出発原料として、YSZの微粉体とイットリウムとジルコニウムの金属有機化合物を用いた。金属有機化合物はオクチル酸イットリウムとオクチル酸ジルコニウムであった。これらは熱分解後の組成が8mol%Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> - 92mol%ZrO<sub>2</sub>となる様調整した。またYSZ微粉体と金属有機化合物の比率は、YSZに換算して約100:1であった。

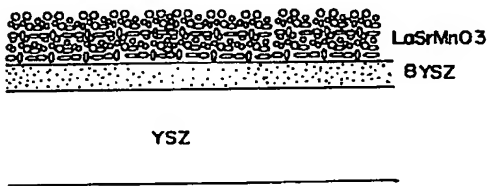
【0016】図3は本発明の方法により得られた空気極と従来の空気極を使用する単電池の性能曲線の比較図である。

【0017】図3は横軸に電流密度(単位A/cm<sup>2</sup>)、縦軸に電圧(単位V)を示す。従来セルの出力密度は0.57W/cm<sup>2</sup>であるのに対し、本発明にかかる改良セルの出力密度は0.7W/cm<sup>2</sup>であった。これは本発明の方法が優れていることを証明するものである。

【0018】

\*

【図1】



\*【発明の効果】以上説明したように本発明によれば、オーミックな接触抵抗が大きかったSOFCの空気極と固体電解質の界面において固体電解質層と空気極LaSrMnO<sub>3</sub>との間に酸素イオンの導電性に優れた8YSZの薄層を挟むように構成し、さらに空気極とYSZの薄層を共焼結したので、空気極と固体電解質層との接触抵抗を低減させ、燃料電池の内部抵抗を低減し、燃料電池の出力密度を向上させることができる。

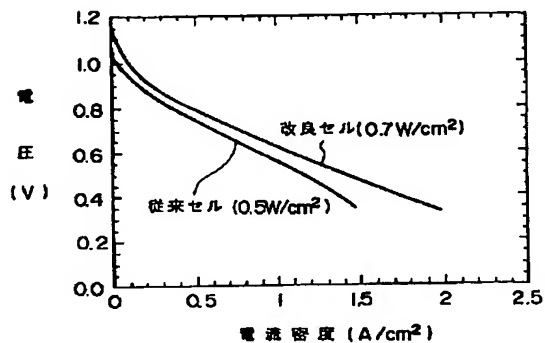
【図面の簡単な説明】

【図1】本発明にかかる固体電解質型燃料電池の空気極の接触抵抗低減方法の概略構造を説明する図である。

【図2】固体電解質層の上に形成された空気極の粒子構造の断面電子顕微鏡写真であり、(a)は従来例(b)は本発明により得られた場合を示す。

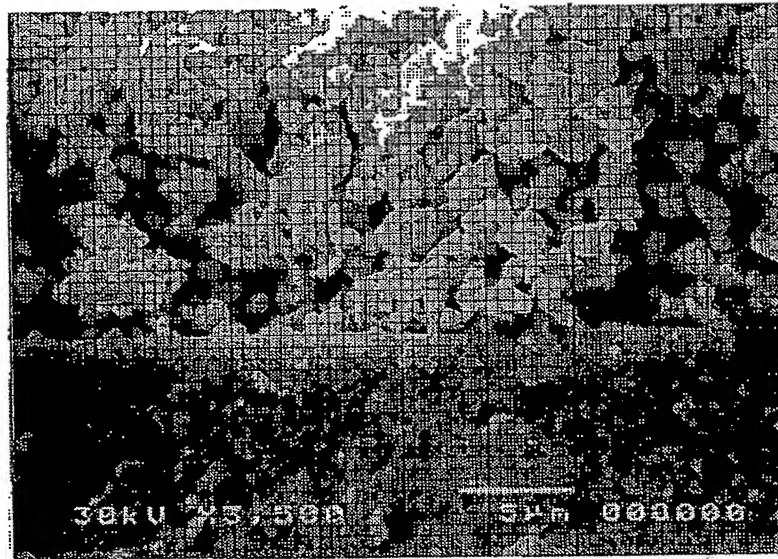
【図3】本発明の方法により得られた空気極と従来の空気極を使用する単電池(セル)の性能曲線の比較図である。

【図3】



【図2】

(a)



(b)

